

## BREVET D'INVENTION

P.V. n° 844.995

Classification internationale

1.274.228

B 01 j



Procédé et dispositif pour guider les gaz dans les installations de synthèse catalytique à haute pression.

Société dite : ÖSTERREICHISCHE STICKSTOFFWERKE AKTIENGESELLSCHAFT résidant en Autriche.

Demandé le 25 novembre 1960, à 13<sup>h</sup> 24<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré par arrêté du 11 septembre 1961.

(Bulletin officiel de la Propriété industrielle, n° 42 de 1961.)

(2 demandes déposées en Autriche au nom de la demanderesse : brevet le 28 novembre 1959, sous le n° A 8.643/59; brevet additionnel le 15 avril 1960, sous le n° A 2.873/60.)

Pour réussir les synthèses catalytiques exothermiques en vue de la production de gaz d'ammoniac, de méthanol et autres gaz, il est indispensable que la réaction s'effectue du début à la fin à la température de réaction optimum. A cet effet, de nombreuses propositions ont été faites afin de se rapprocher le plus possible d'une courbe idéale de température de réaction, en réchauffant le mélange de gaz initial ou en refroidissant le gaz ayant réagi. On mentionnera seulement ici les différents essais qui ont été effectués pour répartir de façon optimum ou pour évacuer la chaleur excédentaire produite par la réaction exothermique, consistant à faire alterner des systèmes de tubes de contact et de tubes de refroidissement avec des garnissages en vrac disposés en parallèle ou en série, ainsi que les dispositifs de refroidissement particuliers, agissant au moyen d'agents de refroidissement ne participant pas à la réaction, constitués par exemple par des serpentins à eau disposés entre des surfaces de contact ou par des conduits amenant indirectement ou directement des gaz froids à la zone de réaction la plus chaude ou en aval de celle-ci, etc.

Ces dispositifs sont d'une part compliqués, donc onéreux et difficiles à contrôler, et d'autre part la teneur en produit de synthèse final du gaz ayant réagi est souvent fortement réduite par l'arrivée de gaz frais. Le refroidissement par eau sous pression circulant dans des serpentins tubulaires, ainsi que les fours avec arrivée exclusive de gaz frais entre les différentes couches ou les différents lits de contact, exigent également un échangeur thermique principal comportant de très longs conduits, afin que le gaz frais arrive au catalyseur à la température initiale ou d'entrée nécessaire.

Le but de l'invention est de permettre la réali-

sation d'un réacteur à haute pression présentant, à l'intérieur d'une chemise entourant le four de synthèse, formant un conduit de guidage des gaz et montée dans une enveloppe extérieure calculée pour résister à de fortes pressions, deux ou plusieurs récipients de contact montés en série, ainsi qu'un échangeur thermique principal monté à l'extrémité du circuit et dans lequel tout le mélange de gaz frais est utilisé d'une manière déterminée en vue d'un refroidissement à contre-courant du gaz de synthèse chauffé par la réaction exothermique avant qu'il n'arrive sur le premier lit ou sur la première couche de contact.

Suivant l'invention, le refroidissement du gaz de synthèse après chacun des étages de réaction s'effectue de telle sorte que la quantité totale de gaz frais, après son passage en direction du bas de la manière connue entre l'enveloppe extérieure et la chemise intérieure entourant le four de synthèse et son réchauffement également de la manière connue dans l'échangeur thermique principal, passe autour de tous les récipients de contact, à l'encontre du courant du gaz arrivant, et circule extérieurement autour de courts tubes faisant communiquer ces récipients entre eux. Le gaz réchauffé et amené ainsi à la température de réaction franchit alors le premier lit de contact, les tubes de communication entre deux lits de contact faisant office d'échangeurs thermiques, et ainsi de suite, jusqu'à ce que le gaz de synthèse ayant réagi de façon optimum quitte enfin le réacteur après avoir traversé l'échangeur thermique principal.

Par suite de la subdivision indiquée de la masse de contact en plusieurs lits distincts de façon connue, de l'échange thermique progressif s'effectuant entre ces lits de contact, et enfin de l'utilisation exclusive, suivant l'invention, de gaz frais pour

le refroidissement sélectif à contre-courant de tous les éléments catalytiques du réacteur, on évite toute dilution du gaz de synthèse servant à une réaction, avec tous les inconvénients qui en découlent, et on obtient une évolution de la courbe de température donnant, d'une manière extrêmement économique, une constitution optimum du produit de synthèse.

Mais avant tout, en dirigeant la totalité du gaz frais conformément à l'invention, il n'est plus nécessaire de porter d'abord ce gaz frais à la température d'amorçage du catalyseur dans l'échangeur thermique principal connu jusqu'à présent. Ce réchauffement s'effectue ici dans les tubes de communication ultérieurs, dont il a été question, prévus entre les divers lits de contact.

En réglant convenablement le niveau des différents lits de catalyseur ou la longueur des tubes de communication prévus entre ceux-ci, on peut maintenir sur toute la longueur des éléments catalytiques une courbe de température pratiquement idéale. En outre, l'échangeur thermique principal monté à l'extrémité du circuit est ainsi soulagé ou déchargé dans une large mesure, de sorte qu'il peut avoir des dimensions beaucoup plus petites, ce qui permet également de mieux utiliser le volume de l'enveloppe extérieure en augmentant la quantité de catalyseur, ceci revenant à augmenter le rendement du four.

Suivant l'invention, ce résultat peut être encore amélioré si le gaz frais ascendant ne passe pas autour des différents récipients à catalyseur, comme il vient d'être expliqué, mais s'il les traverse en passant par des orifices centraux. On peut même supprimer l'espace annulaire périphérique ménagé entre la chemise intérieure du four de synthèse et les récipients de catalyseur, ce qui permet de récupérer encore de la place pour le catalyseur et d'appliquer les récipients de catalyseur contre la chemise intérieure du four, en déchargeant les conduits de communication qui les relient, c'est-à-dire en déchargeant l'échangeur thermique principal.

Cette dernière façon de diriger le gaz à travers des passages centraux permet en outre le monter des conduits co-axiaux à partir du couvercle inférieur ou du couvercle supérieur, pour amener le gaz frais et froid en vue d'un équilibre plus subtil des pointes de température.

C'est ce circuit, conforme à l'invention, qui est utilisé dans les réacteurs modernes à haute pression et dont le principe est illustré à titre d'exemple non limitatif sur le dessin schématique annexé.

Les fig. 1 et 2 sont des vues en coupe verticale de deux modes de réalisation possibles de l'objet de l'invention.

Sur ces figures, les références 1, 2 et 3 désignent respectivement le couvercle supérieur, le couvercle inférieur et l'enveloppe extérieure du réacteur à

haute pression, 19 désigne le conduit d'entrée des gaz à travers un ménage ménagé dans le couvercle 1, 19 le conduit de sortie du gaz de synthèse que l'on fait réagir, situé dans le couvercle inférieur, 4 la chemise intérieure du four de synthèse, ou conduit de guidage des gaz, appliquée de façon étanche aux gaz contre le couvercle 1 de l'enveloppe extérieure par l'intermédiaire d'un presse-étoupe (fig. 1) ou bien obturée à sa partie supérieure par un couvercle (fig. 2). Cette chemise formant conduit 4 présente, à proximité du fond ou de l'extrémité inférieure de l'échangeur thermique principal 6, des orifices 20 à travers lesquels le gaz parvient à cet échangeur thermique principal 6. Les références 7, 8, 9 et 10 désignent respectivement les divers récipients à catalyseur communiquant entre eux par de nombreux tubes de faible longueur laissant passer les gaz et baignés extérieurement par le gaz frais acheminé à contre-courant. Le gaz frais circulant autour de ces tubes 11 est dévié de la manière connue par des chicanes. Sur la fig. 1, la référence 21 désigne un dispositif de chauffage électrique agencé éventuellement de la manière connue qui, sur la fig. 2, est remplacé par un brûleur usuel. La référence 15 désigne l'espace annulaire supplémentaire ou intérieur ménagé entre l'enveloppe extérieure 2 et les parois des récipients à catalyseur 7 à 10. Sur la fig. 2, la référence 12 désigne les passages ou canaux centraux par lesquels le gaz frais traverse les récipients à catalyseur 7, 8, 9. La référence 13 désigne le brûleur, 17 le conduit de dérivation, 14 le tube du brûleur et 16 les conduits d'arrivée de gaz froid aux divers jeux de tubes 11 ou à l'échangeur thermique principal 6.

Les détails de réalisation peuvent être modifiés, sans s'écarter de l'invention, dans le domaine des équivalences techniques.

#### RÉSUMÉ

1° Procédé pour guider les gaz dans les installations de synthèse catalytique à haute pression, comportant deux ou plusieurs récipients à catalyseur communiquant entre eux et disposés les uns au-dessus des autres dans le circuit du gaz, dans une chemise intérieure du four à synthèse, formant conduit de guidage des gaz, consistant, à titre caractéristique, à faire passer entièrement le mélange de gaz froid initial arrivant à l'une des extrémités du four dans un espace annulaire périphérique ménagé entre l'enveloppe extérieure et la chemise intérieure du four de synthèse entourant l'installation de catalyse, puis dans un échangeur thermique principal en soi connu placé à l'extrémité opposée du four, après quoi le gaz partiellement réchauffé remonte dans la chemise intérieure à contre-courant par rapport au courant de gaz arrivant, en contournant extérieurement l'une après l'autre les

parois des divers récipients à catalyseur, pour arriver sur le lit de catalyseur après avoir refroidi de courts tubes disposés entre les divers récipients à catalyseur et les faisant communiquer entre eux, ce gaz retransversant dans l'autre sens, les uns après les autres, les divers récipients à catalyseur et leurs tubes de communication, pour quitter le four en traversant l'échangeur thermique principal.

2° Modes de mise en œuvre du procédé selon 1°, caractérisés par les particularités suivantes, considérées séparément ou collectivement :

a. Le mélange de gaz initial réchauffé dans l'espace annulaire ménagé entre l'enveloppe extérieure du four et sa chemise intérieure, puis ensuite dans l'échangeur thermique principal, traverse les uns après les autres les différents récipients à catalyseur en passant exclusivement par des passages ou canaux ménagés au centre de ceux-ci;

b. En vue de son réchauffement optimum l'amenant à la température d'amorçage de la réaction, le courant de gaz frais, réchauffé sur son parcours à travers l'espace annulaire et l'échangeur thermique principal et autour des tubes de communication disposés entre les divers récipients à catalyseur, est dévié sous le lit supérieur du catalyseur et est dirigé sur le lit de catalyseur d'entrée par un conduit renfermant le brûleur usuel;

c. Pour parfaire le réglage de la température, notamment au début de la mise en marche du four avec un catalyseur frais, on ajoute un mélange dosable de gaz frais au courant de gaz frais réchauffé indirectement dans l'espace annulaire ménagé entre l'enveloppe extérieure et la chemise intérieure du four et dans l'échangeur thermique principal, ainsi que dans un ou plusieurs jeux de courts tubes de communication reliant les divers récipients de catalyseur avant son entrée dans le premier lit de catalyseur ou après qu'il a quitté l'échangeur thermique principal, ou encore sur son trajet entre les deux.

3° Dispositif pour la mise en œuvre du procédé selon 1° ou 2°, comportant une enveloppe extérieure résistante aux pressions élevées, une chemise

intérieure entourant l'ensemble du dispositif catalytique et fermée à sa partie supérieure, un échangeur thermique principal monté à une extrémité du four, et un ou plusieurs récipients à catalyseur montés les uns derrière les autres dans le trajet du gaz et communiquant entre eux, caractérisé en ce que les différents récipients à catalyseur communiquent entre eux de manière à laisser passer les gaz par un certain nombre de courts tubes, et ménagent un espace annulaire supplémentaire entre leurs parois et la chemise intérieure ou le conduit de guidage des gaz.

4° Modes de réalisation du dispositif selon 3°, caractérisés par les particularités suivantes, considérées séparément ou collectivement :

aa. Les récipients à catalyseur, raccordés par leur périphérie d'une manière étanche aux gaz à la chemise intérieure du four à synthèse, présentent des passages centraux correspondant entre eux, par lesquels le gaz frais peut passer en direction du lit de catalyseur d'entrée après s'être réchauffé dans l'échangeur thermique principal et dans les tubes de communication faisant communiquer les récipients à catalyseur;

bb. Des conduits co-axiaux aux orifices centraux des différents récipients à catalyseur correspondant entre eux sont disposés dans ces orifices, le mélange froid de gaz de synthèse étant amené indirectement par ces conduits aux différents jeux de courts tubes de communication disposés entre les récipients à catalyseur, en vue de leur refroidissement;

cc. Un conduit de dérivation coaxial au tube du brûleur est disposé de manière à diriger le gaz frais, préalablement réchauffé sur son trajet jusqu'en amont du lit de catalyseur d'entrée, à l'extrémité ouverte vers le bas du tube du brûleur puis, à travers ce tube, au lit de catalyseur d'entrée.

Société dite :

ÖSTERREICHISCHE STICKSTOFFWERKE  
AKTIENGESELLSCHAFT

Par procuration :

Cabinet MAULVAULT

